



⑬ BUNDESREPUBLIK
DEUTSCHLAND



DEUTSCHES
PATENT- UND
MARKENAMT

⑫ **Offenlegungsschrift**
⑩ **DE 100 48 759 A 1**

⑤ Int. Cl. 7:
C 23 C 14/12
C 23 C 14/22

⑳ Aktenzeichen: 100 48 759.9
㉔ Anmeldetag: 29. 9. 2000
㉕ Offenlegungstag: 11. 4. 2002

DE 100 48 759 A 1

㉑ Anmelder:
Aixtron GmbH, 52072 Aachen, DE

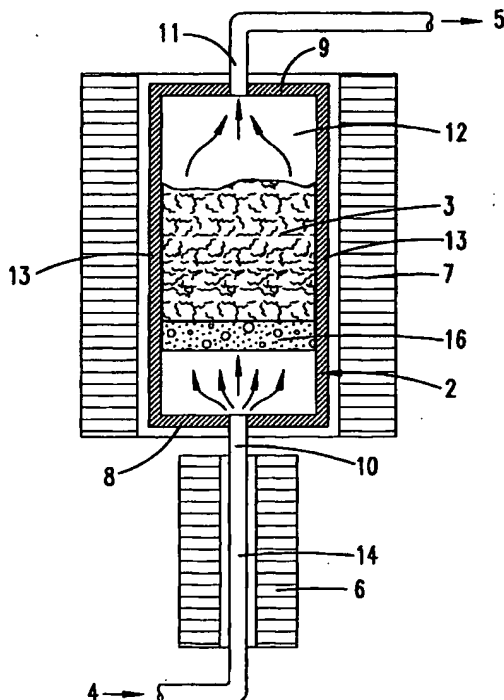
㉒ Vertreter:
H.-J. Rieder und Kollegen, 42329 Wuppertal

㉓ Erfinder:
Jürgensen, Holger, Dr., 52072 Aachen, DE; Strauch,
Gerd, 52072 Aachen, DE; Schwambra, Markus,
52064 Aachen, DE

Die folgenden Angaben sind den vom Anmelder eingereichten Unterlagen entnommen

⑤④ Verfahren und Vorrichtung zum Abscheiden insbesondere organischer Schichten im Wege der OVPD

⑤⑦ Die Erfindung betrifft ein Verfahren und eine Vorrichtung zum Abscheiden insbesondere organischer Schichten, bei dem in einem beheizten Reaktor (1) ein in einer von einem Behälter (2) gebildeten Quelle (I) bevorrateter, nicht gasförmiger Ausgangsstoff (3) mittels eines Trägergases (4) im gasförmigen Zustand (5) von der Quelle (I) zu einem Substrat (II) transportiert wird, wo er auf einem Substrat (II) deponiert. Aus der Erkenntnis heraus, dass die Quelle zufolge einer nicht reproduzierbar einstellbaren Wärmezufuhr und einer Abkühlung durch das Trägergas eine nicht vorhersagbare Produktionsrate gasförmigen Ausgangsstoffes hat, wird vorgeschlagen, dass das vorgeheizte (6) Trägergas (4) von unten nach oben den zufolge beheizter (7) Behälterwände (13) im wesentlichen isotherm zum Trägergas gehaltenen Ausgangsstoff (3) durchspült.



DE 100 48 759 A 1

[0001] Die Erfindung betrifft ein Verfahren zum Abscheiden besonderer organischer Schichten, bei dem in einem beheizten Reaktor ein in einer von einem Behälter gebildeten Quelle bevorrateter, nicht gasförmiger Ausgangsstoff mittels eines Trägergases im gasförmigen Zustand von der Quelle zu einem Substrat transportiert wird, wo er auf dem Substrat deponiert.

[0002] Mit diesen Verfahren werden insbesondere organische Leuchtdioden (OLED) hergestellt. Es wird als OVPD-Verfahren (Organic Vapour Phase Deposition) bezeichnet. Als Ausgangsstoffe werden organische Moleküle verwendet, die insbesondere als Salze und granulatformig vorliegen, aber auch im flüssigen Zustand vorliegen können. Diese Moleküle haben einen sehr geringen Dampfdruck. Durch Erwärmung des Ausgangsstoffes tritt dieser in den gasförmigen Zustand im Wege der Sublimation über. Im Stand der Technik ist der Behälter eine oben offene Wanne, in welcher der Ausgangsstoff enthalten ist. Diese Wanne wird in eine Quellenzone des beheizten Reaktors eingeschoben. Der aus der Granulatschüttung oder einer Schmelze verdampfende Ausgangsstoff wird mittels eines Trägergases, beispielsweise Stickstoff durch den Reaktor transportiert. Das Substrat kann sich auf einer Substrattemperatur befinden, die geringer ist als die Quellentemperatur. Dort kann der Ausgangsstoff deponieren. Im Stand der Technik werden Prozessdrucke von 0,2 mbar verwendet.

[0003] Die Erfindung betrifft ferner eine Vorrichtung zum Durchführen des Verfahrens mit einer einem beheizbaren Reaktor zugeordneten Quelle in Form eines Behälters zur Aufnahme eines nicht gasförmigen Ausgangsstoffes.

[0004] Der Erfindung liegt die Aufgabe zugrunde, Maßnahmen anzugeben, um die Wachstumsraten präziser vorherbestimmen zu können und effizienter als bisher aus dem Stand der Technik bekannt größere Substratflächen zu beschichten.

[0005] Der Erfindung liegt die Erkenntnis zugrunde, dass die Quelle zufolge einer nicht reproduzierbar einstellbaren Wärmezufuhr und einer Abkühlung durch das Trägergas eine nicht vorhersagbare Produktionsrate gasförmigen Ausgangsstoffes hat. Was die als nachteilig erachteten schwankenden Wachstumsraten nach sich zieht.

[0006] Zur Lösung des vorgenannten Problems wird die in den Ansprüchen angegebene Erfindung vorgeschlagen. Der Anspruch 1 zielt darauf ab, dass bei dem Verfahren das Trägergas vorgeheizt wird und von unten nach oben den zufolge beheizter Behälterseitenwände isotherm zum Trägergas gehaltenen Ausgangsstoff durchspült. Da das in den Behälter einströmende Trägergas dieselbe Temperatur besitzt wie der durch Wärmeübertragung von den Behälterwänden aufgeheizte Ausgangsstoff findet eine Abkühlung nicht mehr statt. Die Kondensationswärme, die dem insbesondere pulver- oder granulatformigen Ausgangsstoff bei der Verdampfung entzogen wird, wird über die Seitenwände wieder zugeführt. Zur Unterstützung der Wärmezufuhr können auch Heizstäbe in den Ausgangsstoff ragen. Die Prozessparameter sind vorzugsweise so eingestellt, dass das Trägergas bereits wenige Millimeter nach In-Kontakt-Treten mit dem Ausgangsstoff gesättigt ist. Vorzugsweise findet die Sättigung im unteren Drittel bzw. unterem Fünftel der Aufnahmekammer statt. In einer Variante des Verfahrens kann der Behälter von oben nachgefüllt werden. Bevorzugt wird das Trägergas von derselben Heizung vorgeheizt, die auch den Behälter heizt. Als Behälterwand kommt insbesondere Metall vorzugsweise Aluminium in Betracht.

[0007] Die Erfindung betrifft ferner eine Weiterbildung der gattungsgemäßen Vorrichtung dadurch, dass der Behälter

ter einen bodenseitigen Gaseinlass und einen deckelseitigen Gasauslass und zwischen Gaseinlass und Gasauslass eine mit dem Ausgangsstoff auffüllbare Aufnahmekammer besitzt, und den Behälterwänden sowie der in den Gaseinlass mündenden Trägergaszuleitung eine Heizung zugeordnet ist zum isothermen Aufheizen des Trägergases und des Ausgangsstoffes. Der Behälter ist ringsumgeschlossen und besitzt außer der Einlass- bzw. Auslassöffnung vorzugsweise nur eine Nachfüllöffnung. In einer bevorzugten Ausgestaltung des Behälters liegt über dem Gaseinlass eine gasdurchlässige Zwischenwand, die aus porösem Material bestehen kann. Die Zwischenwand kann als Fritte ausgebildet sein. Auf dieser Zwischenwand liegt der insbesondere pulverförmige oder granuliert Ausgangsstoff als Schüttung. Das Trägergas wird von einer vorgeschalteten Heizung auf die Quellentemperatur gebracht. Dieses Trägergas tritt dann durch die poröse Zwischenwand gleichmäßig hindurch und durchspült die auf der Zwischenwand liegende Schüttung. Es ist auch möglich flüssige Ausgangsstoffe zu verwenden. Dann wird die Flüssigkeit von dem Trägergas durchspült, ähnlich wie es bei einer Waschflasche der Fall ist. Die Zwischenwand kann eben sein, sie kann aber auch kuppel- oder konusförmig ausgebildet sein. In einer bevorzugten Ausgestaltung wird das Trägergas und der Behälter von derselben Heizung beheizt. Dies ist nicht nur bautechnisch vorteilhaft. Es bietet auch eine hohe Gewähr dafür, dass das in den Behälter einströmende Trägergas bereits dort eine Temperatur besitzt, die der Temperatur des Ausgangsstoffes entspricht. In einer Weiterbildung der Vorrichtung ragen in den Ausgangsstoff Heizstäbe ein, die separat beheizt werden können, oder wärmeleitend mit der Behälterwand verbunden sind, um dem Ausgangsstoff Wärme zuzuführen. Die Aufnahmekammer kann von oben nachfüllbar sein. Oberhalb der Aufnahmekammer kann eine Vorratskammer vorgesehen sein. In dieser Vorratskammer kann sich ein Vorrat des Ausgangsstoffes befinden. Dieser kann über einen verschließbaren Kanal der Aufnahmekammer zugeführt werden, um diese nachzufüllen. Die Vorratskammer braucht nicht beheizt zu sein. Sie kann sogar außerhalb des Reaktors angeordnet sein und nur mit einer Nachfüllverbindung mit dem Reaktor bzw. mit dem Behälter verbunden sein.

[0008] Ausführungsbeispiele der Erfindung werden nachfolgend anhand beigefügter Zeichnungen erläutert. Es zeigen:

[0009] Fig. 1 in grob schematisierter Form das Verfahren bzw. die Vorrichtung zur Ausübung des Verfahrens, wie es Stand der Technik ist,

[0010] Fig. 2 ebenfalls nur schematisch ein erstes Ausführungsbeispiel einer erfindungsgemäß ausgebildeten Quelle,

[0011] Fig. 3 ein weiteres Ausführungsbeispiel der Erfindung in schematisierter Darstellung,

[0012] Fig. 4 ein drittes Ausführungsbeispiel der Erfindung in schematisierter Darstellung,

[0013] Fig. 5 ein viertes Ausführungsbeispiel der Erfindung in schematisierter Darstellung und

[0014] Fig. 6 den Verlauf der Anreicherung des Trägergases mit dem gasförmigen Ausgangsstoff als Funktion des Partialdruckes des gasförmigen Ausgangsstoffes im Trägergas vom Ort oberhalb der Zwischenwand.

[0015] Beim OVPD-Verfahren wird das Trägergas 4 einem von außen beheizten Reaktor 1 zugeführt. In einer ersten heißen Zone, der Quellenzone I, wird ein Behälter 2 in den Reaktor gegeben, welcher eine Schüttung eines Ausgangsstoffes enthält. Der Ausgangsstoff sublimiert bei der Quellentemperatur. Der gasförmige Ausgangsstoff 5 wird sodann mit dem Trägergas 4 zum Substrat II transportiert, wo es aus der Gasphase kondensiert, um dort eine Schicht abzuscheiden.

[0016] Die in den Fig. 2 bis 5 schematisch dargestellten Vorrichtungen ersetzen den in der Fig. 1 dargestellten wannenförmigen Behälter 2 des Standes der Technik.

[0017] Der Behälter 2 ist erfindungsgemäß geschlossen. Er besitzt einen Boden 8, insbesondere zylinderförmige Seitenwände 13 und einen Deckel 9. Der Boden besitzt einen Gaseinlass 10. Der Deckel besitzt einen Gasauslass 11. Im unteren Bereich des aus Metall, insbesondere Aluminium bestehenden Behälters 2 befindet sich ein Einströmraum, in welchen das Trägergas 4, welches durch die Trägergaszuleitung 14 fließt, einströmen kann. Nach oben wird dieser Raum durch eine poröse Zwischenwand 16 begrenzt. Durch diese Zwischenwand tritt der Gasstrom hindurch und in den auf der Zwischenwand 16 geschütteten Ausgangsstoff 3. Der Ausgangsstoff 3 wird von unten nach oben von dem Trägergas 4 durchspült, wobei das Trägergas sich bereits unmittelbar oberhalb der Zwischenwand 16 mit dem gasförmigen Ausgangsstoff sättigt und zusammen mit dem gasförmigen Ausgangsstoff 5 aus dem Gasauslass 11 in den Reaktor austritt. Die ganze Vorrichtung, wie sie in den Fig. 2 bis 5 dargestellt ist, kann in den Reaktor integriert werden. Der Reaktor wird baulich angepasst.

[0018] Die Zuleitung 14 wird von einer Heizung 6 beheizt. Diese heizt das Trägergas 4 auf dieselbe Temperatur, die der Ausgangsstoff 3 in der oberhalb der Zwischenwand 16 angeordneten Aufnahmekammer 12 besitzt. Um den Ausgangsstoff 3 mit der Wärmemenge zu versorgen, die beim Verdampfen den Ausgangsstoff 3 entzogen wird, besitzt der Behälter 2 eine Behälterheizung 7. Im Ausführungsbeispiel umgibt die Behälterheizung 7 die äußere Behälterwandung 13, um sie aufzuheizen. Durch Wärmeleitung wird die der Behälterwandung 13 zugeführte Wärme dem Ausgangsstoff 3 zugeführt. Bei dem in den Fig. 3 und 4 dargestellten Ausführungsbeispiel ist die Heizung 6 der Trägergaszuleitung 14 dieselbe Heizung, wie die Behälterheizung 7. Um die Wegstrecke des aufzuheizenden Trägergases 4 zu verlängern, kann die Trägergaszuleitung 14 wendelförmig gestaltet sein. Bei dem in Fig. 3 dargestellten Ausführungsbeispiel ist die Zwischenwand 16 kuppelförmig gestaltet. Außerdem ragen dort Heizstäbe 15 in die Schüttung des Ausgangsstoffes 3 hinein. Die Heizstäbe 15 sind wärmeleitverbunden mit der Behälterwandung 13.

[0019] Bei dem in Fig. 4 dargestellten Ausführungsbeispiel hat die Zwischenwand 16 eine konische Gestalt. Die Versorgungsleitung für das Trägergas bzw. die Ableitung desselben kann durch Öffnungen einer den Behälter und die Zuleitung 14 umgebenden Heizung 6, 7 erfolgen.

[0020] Bei dem in der Fig. 5 dargestellten Ausführungsbeispiel ist die Aufnahmekammer 12 von oben nachfüllbar. Hierzu mündet ein Füllkanal 19 in den Behälterdeckel. Dieser Füllkanal 19 kann mit einem Verschluss 18 verschlossen werden. Oberhalb des Verschlusses befindet sich eine Vorratskammer 17, in welcher sich ein Vorrat des Ausgangsstoffes 3 befindet. Die Vorratskammer kann sich außerhalb des Reaktors befinden und größer sein, als dargestellt.

[0021] In der Fig. 6 ist dargestellt, dass der Partialdruck P des Ausgangsstoffes im Trägergas schon bei einer geringfügigen Strecke D oberhalb der Zwischenwand 16 den Sättigungsdruck erreicht hat, so dass eine Quellenverarmung auch dann nicht stattfindet, wenn der Füllstand der Aufnahmekammer 12 absinkt.

[0022] Durch die erfindungsgemäßen Maßnahmen ist sichergestellt, dass die als den Quellenumsatz beeinträchtigten Parameter wie Quelltemperatur und freie Oberfläche des Ausgangsmaterials keine nachteiligen Auswirkungen auf die Reproduzierbarkeit der Wachstumsrate mehr besitzen.

[0023] Bei dem in der Fig. 4 dargestellten Ausführungs-

beispiel ist vor dem Gasauslass in dem Reaktor ein Filter in Form einer Fritte vorgesehen, um zu verhindern, dass Feststoffteilchen oder Tropfen aus dem Behälter in den Reaktor transportiert werden.

[0024] In einer derzeit nicht bevorzugten Variante der Erfindung ist ferner vorgesehen, dass das Trägergas mit erhöhter Temperatur in den Behälter gebracht wird. Die Wärme, die zur Sublimation des Ausgangsstoffes erforderlich ist, kann dann zumindest teilweise dem Trägergas entnommen werden, wobei sich das Trägergas dann auf die Behälterwand-Temperatur abkühlt, so dass wieder isotherme Zustände herrschen.

[0025] Das Trägergas kann dadurch erwärmt werden, dass die Zwischenwand 16 beheizt wird. Hierzu kann die Zwischenwand 16 aus Metall gefertigt sein.

[0026] Alle offenbarten Merkmale sind (für sich) erfindungswesentlich. In die Offenbarung der Anmeldung wird hiermit auch der Offenbarungsinhalt der zugehörigen/beigefügten Prioritätsunterlagen (Abschrift der Voranmeldung) vollinhaltlich mit einbezogen, auch zu dem Zweck, Merkmale dieser Unterlagen in Ansprüche vorliegender Anmeldung mit aufzunehmen.

Patentansprüche

1. Verfahren zum Abscheiden insbesondere organischer Schichten, bei dem in einem beheizten Reaktor (1) ein in einer von einem Behälter (2) gebildeten Quelle (I) bevorrateter, nicht gasförmiger Ausgangsstoff (3) mittels eines Trägergases (4) im gasförmigen Zustand (5) von der Quelle (I) zu einem Substrat (II) transportiert wird, wo er auf dem Substrat (II) deponiert, **dadurch gekennzeichnet**, dass das vorgeheizte (6) Trägergas (4) von unten nach oben den zufolge beheizter (7) Behälterwänden (13) im Wesentlichen isotherm zum Trägergas gehaltenen Ausgangsstoff (3) durchspült.
2. Verfahren nach einem oder mehreren der vorhergehenden Ansprüche oder insbesondere danach, dadurch gekennzeichnet, dass dem Ausgangsstoff (13) die Verdampfungswärme über die Behälterwände (13) und/oder über in den Ausgangsstoff (3) ragende Heizstäbe (15) zugeführt wird.
3. Verfahren nach einem oder mehreren der vorhergehenden Ansprüche oder insbesondere danach, dadurch gekennzeichnet, dass das Trägergas bereits im unteren Drittel bevorzugt unteren Fünftel der Aufnahmekammer mit dem gasförmigen Ausgangsstoff gesättigt ist.
4. Verfahren nach einem oder mehreren der vorhergehenden Ansprüche oder insbesondere danach, dadurch gekennzeichnet, dass der Behälter (2) von oben nachgefüllt wird.
5. Verfahren nach einem oder mehreren der vorhergehenden Ansprüche oder insbesondere danach, dadurch gekennzeichnet, dass das Trägergas mit überhöhter Temperatur dem Behälter zugeleitet wird, so dass die Sublimationswärme zumindest teilweise dem Trägergas entnommen wird.
6. Vorrichtung zur Durchführung eines Verfahrens insbesondere gemäß einem der vorhergehenden Ansprüche, mit einer einem beheizten Reaktor zugeordneten Quelle (I) in Form eines Behälters (2) zur Aufnahme eines nicht gasförmigen Ausgangsstoffes (3), dadurch gekennzeichnet, dass der Behälter (2) einen bodenseitigen (8) Einlass (10) und einen deckelseitigen (9) Gasauslass (11) und zwischen Gaseinlass (10) und Gasauslass (11) eine mit dem Ausgangsstoff auffüllbare Aufnahmekammer (12) besitzt, und den Behälterwänden

(13) sowie der in den Gaseinlass (10) mündenden Trägergaszuleitungen (14) eine Heizung (6, 7) zugeordnet ist, zum im Wesentliche isothermen Aufheizen des Trägergases (4) und des Ausgangsstoffes (3).

7. Vorrichtung nach einem der vorhergehenden Ansprüche oder insbesondere danach, dadurch gekennzeichnet, dass der Behälter (2) eine vom Gaseinlass beabstandete, gasdurchlässige Zwischenwand (16) besitzt, auf welcher der insbesondere pulverförmige oder granuliert Ausgangsstoff liegt.

8. Vorrichtung nach einem oder mehreren der vorhergehenden Ansprüche oder insbesondere danach, dadurch gekennzeichnet, dass die Zwischenwand (16) eben, kuppel- oder konusförmig ist.

9. Vorrichtung nach einem oder mehreren der vorhergehenden Ansprüche oder insbesondere danach, dadurch gekennzeichnet, dass das Trägergas (4) und der Behälter (2) von derselben Heizung (6, 7) beheizt werden.

10. Vorrichtung nach einem oder mehreren der vorhergehenden Ansprüche oder insbesondere danach, gekennzeichnet durch in die Aufnahme (12) ragende Heizstäbe (15).

11. Vorrichtung nach einem oder mehreren der vorhergehenden Ansprüche oder insbesondere danach, gekennzeichnet durch eine oberhalb der Aufnahmekammer (12) angeordnete Vorratskammer (17), welche mit der Aufnahmekammer (12) über einen abschottbaren Kanal (19) verbunden ist.

12. Vorrichtung nach einem oder mehreren der vorhergehenden Ansprüche oder insbesondere danach, dadurch gekennzeichnet, dass die Zwischenwand (16) beheizbar ist und insbesondere aus Metall besteht.

13. Vorrichtung nach einem oder mehreren der vorhergehenden Ansprüche oder insbesondere danach, dadurch gekennzeichnet, dass der Gasauslass (11) einen Filter insbesondere in Form einer Fritte aufweist.

Hierzu 4 Seite(n) Zeichnungen

40

45

50

55

60

65

Fig. 1

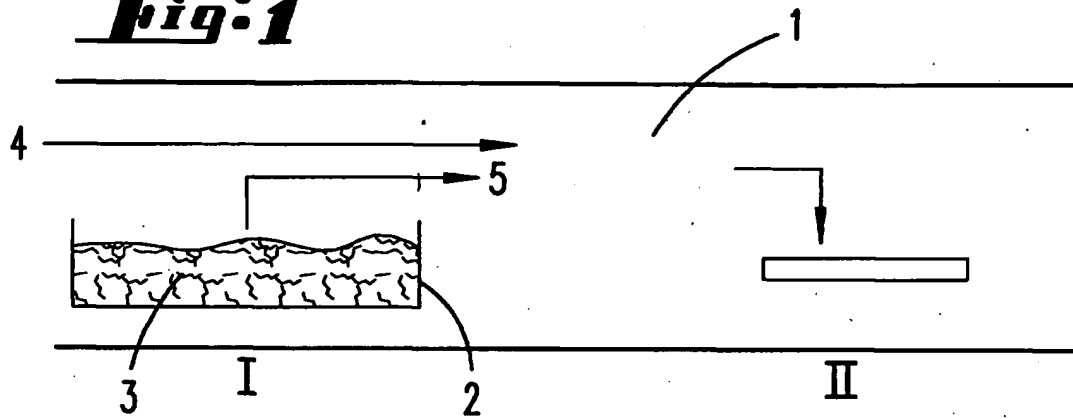


Fig. 2

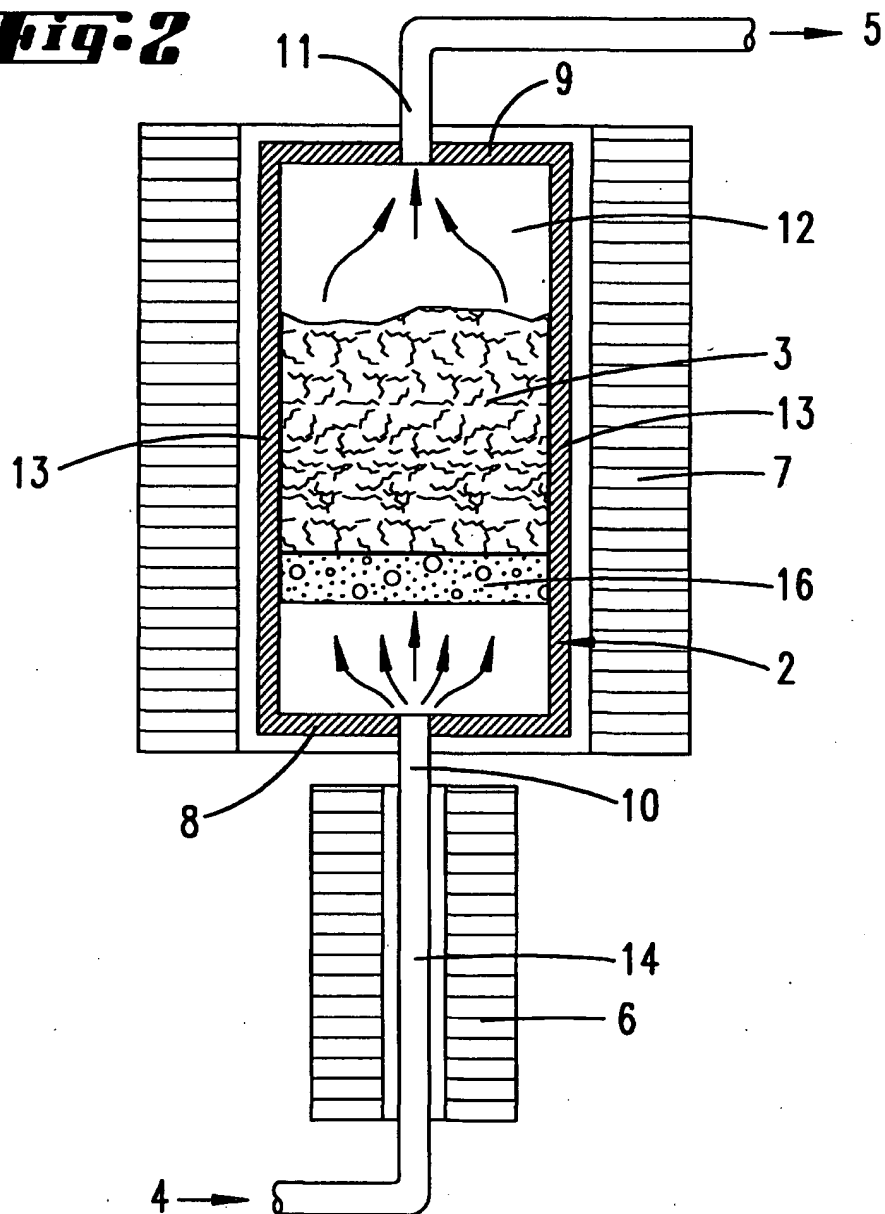


Fig. 3

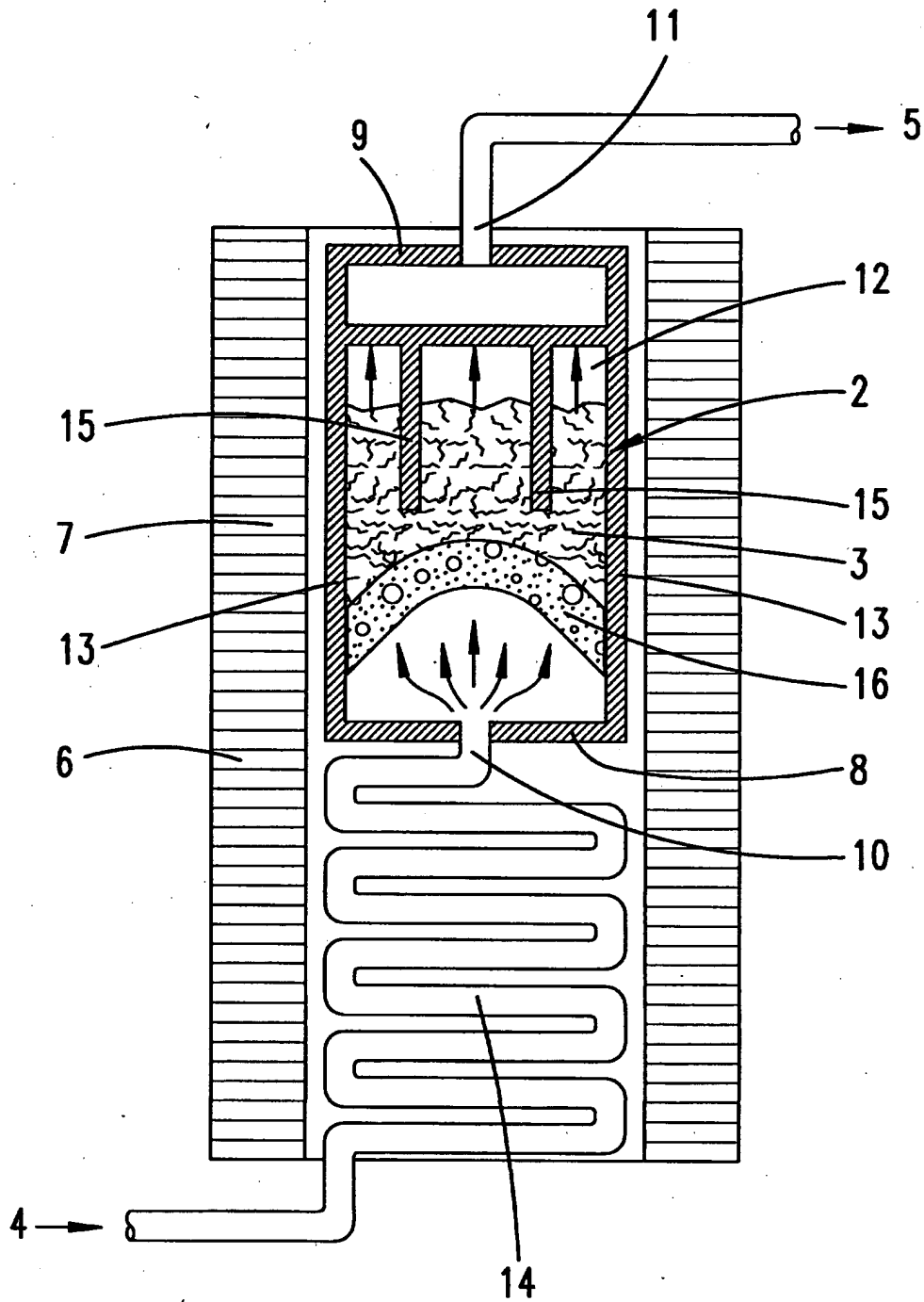


Fig. 4

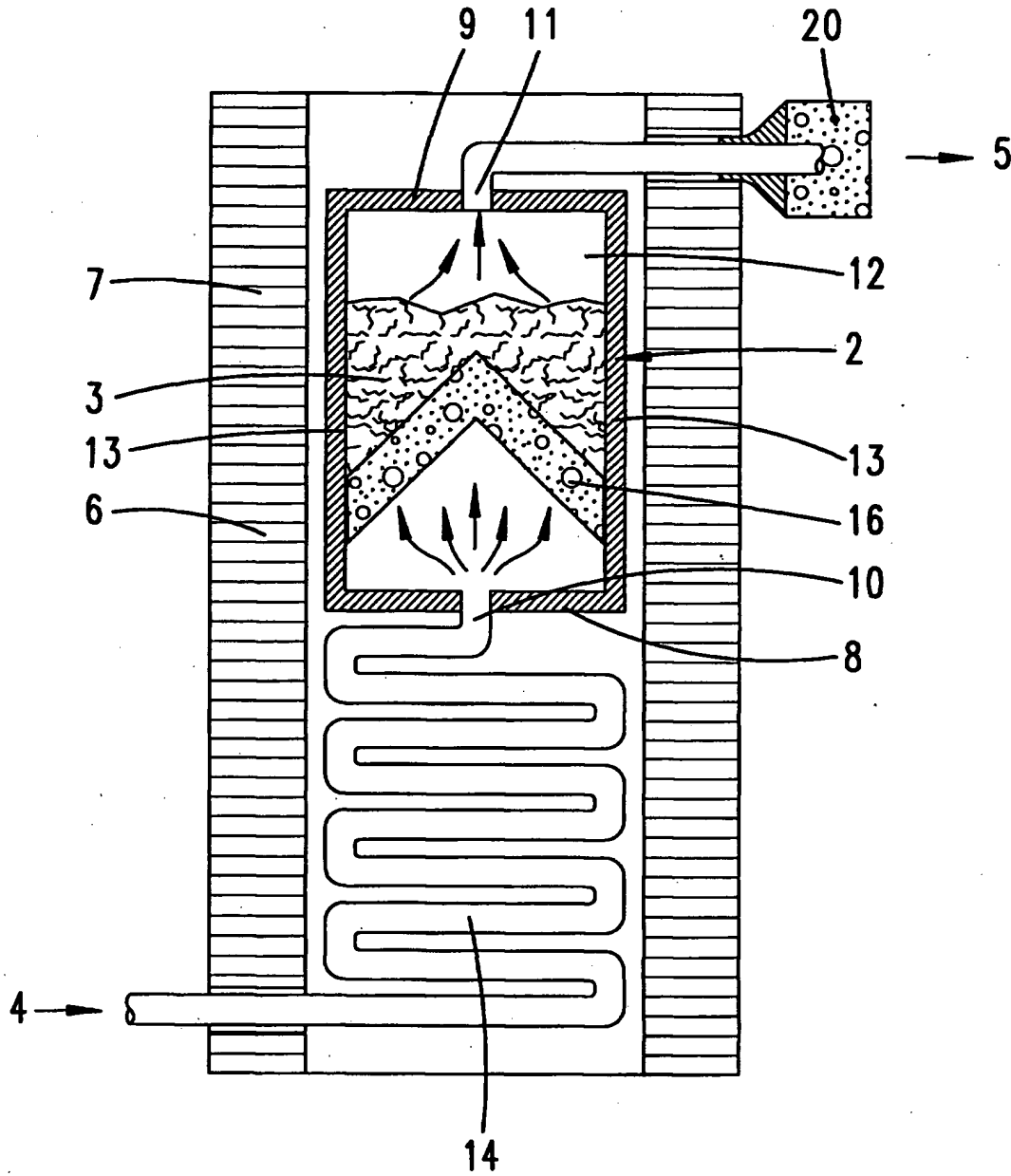


Fig. 5

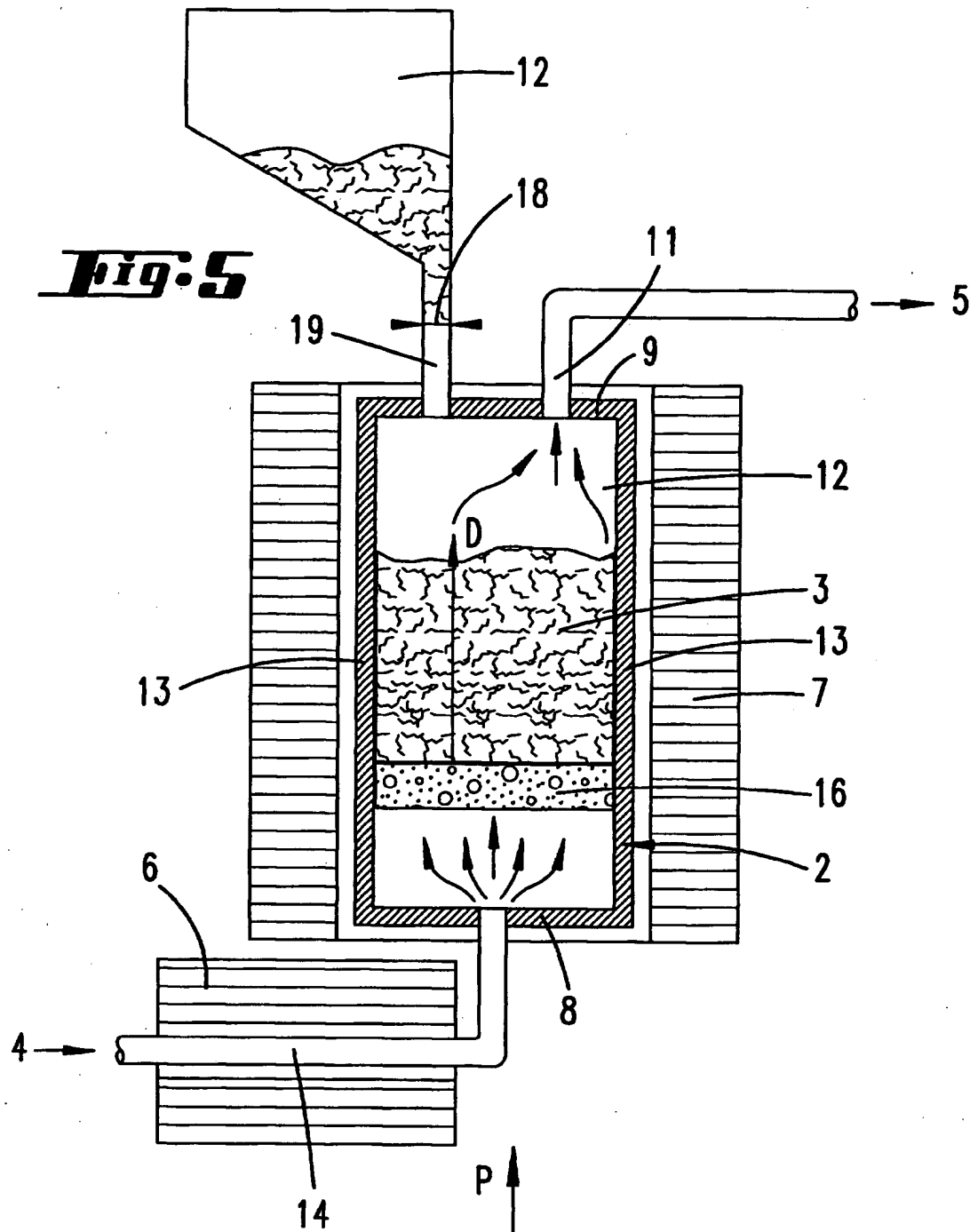


Fig. 6

